

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平8-92223

(43)公開日 平成8年(1996)4月9日

(51)Int.Cl. ⁶	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
C 0 7 D 231/14				
A 0 1 N 43/08		B		
43/10		B		
43/40	1 0 1	A		
43/54		A		

審査請求 未請求 請求項の数 3 O L (全 20 頁) 最終頁に続く

(21)出願番号 特願平6-231599

(71)出願人 000003126

三井東圧化学株式会社

東京都千代田区霞が関三丁目2番5号

(22)出願日 平成6年(1994)9月27日

(72)発明者 吉川 幸宏

千葉県茂原市東郷1144番地 三井東圧化学株式会社内

(72)発明者 富谷 完治

千葉県茂原市東郷1144番地 三井東圧化学株式会社内

(72)発明者 川島 秀雄

千葉県茂原市東郷1144番地 三井東圧化学株式会社内

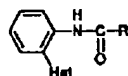
最終頁に続く

(54)【発明の名称】 ヘテロ環置換アニリン誘導体およびこれを有効成分とする農園芸用殺菌剤

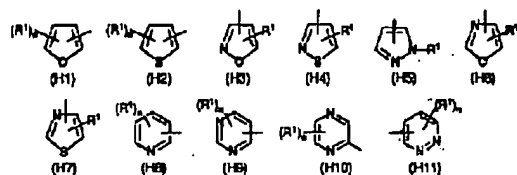
(57)【要約】

【目的】 本発明は優れた病害防除効果を示すと共に、作物に対しても安全な農園芸用殺菌剤を提供することを目的とする。

【構成】 一般式(1)で表わされるヘテロ環アニリン誘導体。

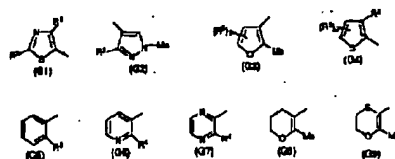


【但し、Hetは、下記式で表わされるH1からH11の複素環式基を表わし、



(式中、R¹ は水素原子、炭素数1から4のアルキル基、ハロゲン原子または炭素数1から4のハロアルキル基を意味する。) Rは下記式で表わされるG1からG9

の環式基を意味し、



(式中、R² は炭素数1から4のアルキル基、ハロゲン原子または炭素数1から4のハロアルキル基を、R³ は水素原子または炭素数1から4のアルキル基を、R⁴ はハロゲン原子を意味する。)]

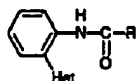
1

2

【特許請求の範囲】

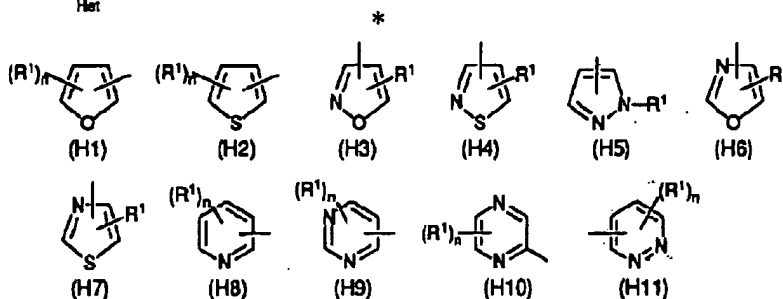
【請求項 1】 一般式 (1) (化 1) で表わされるヘテロ環アニリン誘導体。

【化 1】



* [但し、Het は、下記式 (化 2) で表わされる H1 から H11 の複素環式基を表わし、

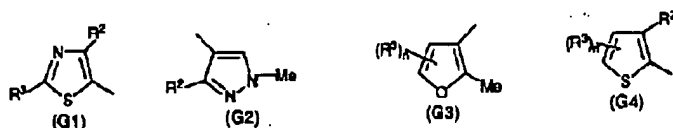
【化 2】



(式中、R¹ は水素原子、炭素数 1 から 4 のアルキル基、ハロゲン原子または炭素数 1 から 4 のハロアルキル基を意味する。) R は下記式 (化 3) で表わされる G1 ※

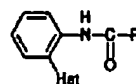
※から G 9 の環式基を意味し、

【化 3】



(式中、R² は炭素数 1 から 4 のアルキル基、ハロゲン原子または炭素数 1 から 4 のハロアルキル基を、R³ は水素原子または炭素数 1 から 4 のアルキル基を、R⁴ はハロゲン原子を意味する。)

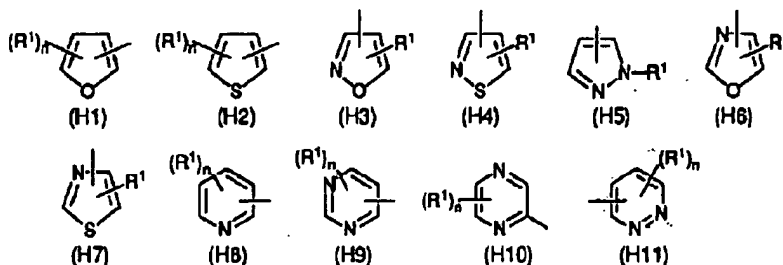
★ 【化 4】



【請求項 2】 一般式 (1) (化 4) で表わされるヘテロ環アニリン誘導体を有効成分として含有する農薬用殺菌剤。

[但し、Het は、下記式 (化 5) で表わされる H1 から H11 の複素環式基を表わし、

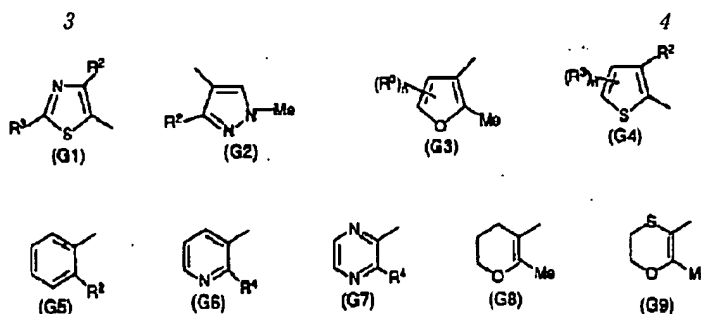
【化 5】



(式中、R¹ は水素原子、炭素数 1 から 4 のアルキル基、ハロゲン原子または炭素数 1 から 4 のハロアルキル基を意味する。) R は下記式 (化 6) で表わされる G1

から G 9 の環式基を意味し、

【化 6】

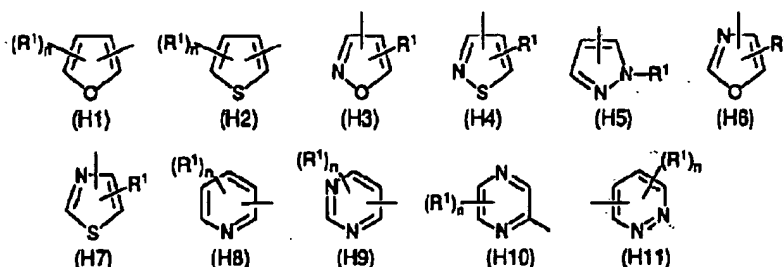


(式中、 R^2 は炭素数1から4のアルキル基、ハロゲン原子または炭素数1から4のハロアルキル基を、 R^3 は水素原子または炭素数1から4のアルキル基を、 R^4 はハロゲン原子を意味する。)

【請求項3】 一般式(1)(化7)で表わされるヘテロ環アニリン誘導体を植物病原菌類またはその生息場所に施用することを特徴とする植物病害の防除方法。

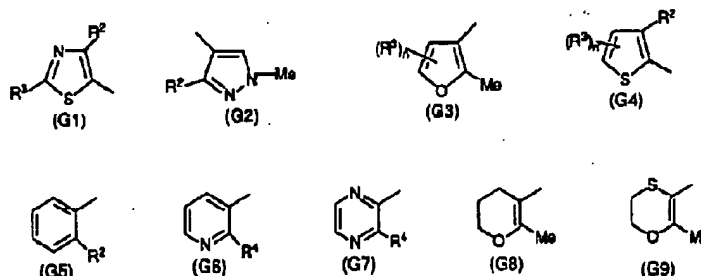


但し、Hetは、下記式(化8)で表わされるH1からH11の複素環式基を表わし、



(式中、 R^1 は水素原子、炭素数1から4のアルキル基、ハロゲン原子または炭素数1から4のハロアルキル基を意味する。) Rは下記式(化9)で表わされるG1※

※からG9の環式基を意味し、



(式中、 R^2 は炭素数1から4のアルキル基、ハロゲン原子または炭素数1から4のハロアルキル基を、 R^3 は水素原子または炭素数1から4のアルキル基を、 R^4 はハロゲン原子を意味する。)

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は、新規なヘテロ環置換アニリン誘導体、該誘導体を有効成分として含有する農薬用殺菌剤および該誘導体を植物病原菌類またはその生息場所に施用することを特徴とする植物病害の防除方法に関する。

【0002】

【従来の技術】 従来から極めて多岐にわたるカルボン酸アミド類が除草剤、殺菌剤として生理活性を示すことが広く知られており、中でも安息香酸アミド、あるいはヘテロ環カルボン酸アミドについては、殺菌剤として市販

されている薬剤も多い。例えば、安息香酸アミドとして3'-イソプロピルオキシ-2-メチルベンズアニリド、あるいは α 、 α 、 α -トリフルオロ-3'-イソプロピルオキシ-2-トルアニリドはイネ紋枯病、ムギのさび病等に対する殺菌剤として市販されている。また、ヘテロ環カルボン酸アミドとしては5, 6-ジヒドロ-2-メチル-1, 4-オキサチン-3-カルボキシアニリド-4, 4-ジオキシドはキク白さび病、3, 4-ジヒドロ-6-メチル-2H-ピラン-5-カルボキシアニリドはムギのさび病に対する殺菌剤として市販されている。

【0003】 さらに、Pestic. Sci., 38, 1~7 (1993) には、チアゾールカルボン酸アミド類がコハク酸脱水素酵素の働きを阻害することにより、Rhizoctonia菌に対して活性を有すること、Aust. J. Chem., 36, 135~147 (1

983)には、ピラゾールカルボン酸アミド類が同様に *Rhizoctonia* 菌に対して活性を有することが記載されている。

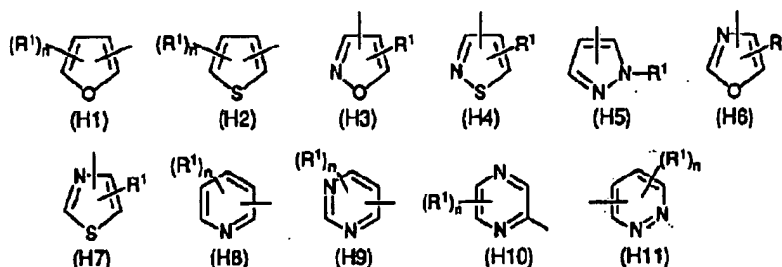
【0004】一方、特開平5-221, 994号公報および特開平6-199, 803号公報には、アミノ基の α -位にアルキル基、アルコキシ基、アルケニル基、アルケニルオキシ基、アルキニル基、アルキニルオキシ基、シクロアルキル基、シクロアルケニル基、シクロアルキルオキシ基、シクロアルケニルオキシ基またはフェニル基の置換した種々の芳香族カルボン酸アニリド類が

【0005】

【発明が解決しようとする課題】従って、本発明の課題は、優れた病害防除効果を示すと共に、作物に対しても安全な農園芸用殺菌剤を提供することにある。

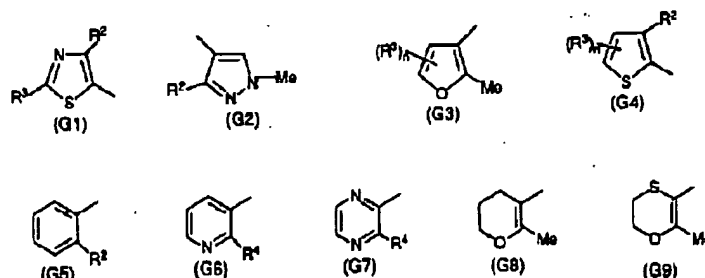
【0006】

* 20



(式中、 R^1 は水素原子、炭素数1から4のアルキル基、ハロゲン原子または炭素数1から4のハロアルキル基を意味する。)

Rは下記式(化12)で表わされるG1からG9の環式※



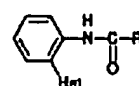
(式中、 R^2 は炭素数1から4のアルキル基、ハロゲン原子または炭素数1から4のハロアルキル基を、 R^3 は水素原子または炭素数1から4のアルキル基を、 R^4 はハロゲン原子を意味する。)

本発明の一般式(1)で表わされるヘテロ環置換アニリン誘導体は新規な化合物であり、反応式(1)(化13)に示した公知の方法により、一般式(2)で表わされるヘテロ環置換アニリンと一般式(3)で表わされるカルボン酸ハライドとを溶融状態または溶液中で反応させることにより製造できる。

*【課題を解決するための手段および作用】本発明者らは前記課題を解決するため、種々のカルボン酸アニリド誘導体について研究を進めた結果、アミノ基の α -位にある種のヘテロ環を有するカルボン酸アニリド誘導体が灰色かび病に対し強力な防除効果を示すことを見だし、本発明を完成した。即ち、本発明は一般式(1)(化10)で表わされるヘテロ環アニリン誘導体、該誘導体を有効成分として含有する農園芸用殺菌剤および該誘導体を植物病原菌類またはその生息場所に施用することを特徴とする植物病害の防除方法である。

【0007】

【化10】



【但し、Hetは、下記式(化11)で表わされるH1からH11の複素環式基を表わし、

【0008】

【化11】

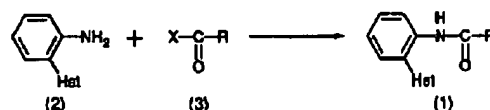
※基を意味し、

【0009】

【化12】

【0010】

【化13】



(式中、HetおよびRは前記の意味を表わし、Xはフッ素原子、塩素原子、臭素原子、またはヨウ素原子を表わす。)

本反応に使用できる溶媒としては反応に不活性なものであればよく、例えば、ヘキサン、石油エーテル等の脂肪

7

族炭化水素、ベンゼン、トルエン、クロロベンゼン、アニソール等の芳香族類、ジオキサン、テトラヒドロフラン、ジエチルエーテル等のエーテル類、アセトニトリル、プロピオニトリルのようなニトリル類、酢酸エチル等のエステル類、ジクロロメタン、クロロホルム、1, 2-ジクロロエタン等のハロゲン化炭化水素類、ジメチルホルムアミド、ジメチルスルホキシド等の非プロトン性溶媒等があげられ、これらの混合溶媒も使用できる。

【0011】本反応はまた塩基の存在下に行ってもよく、塩基として例えば、アルカリ金属およびアルカリ土類金属の水酸化物、例えば水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、水酸化カルシウム等；アルカリ金属、アルカリ土類金属の酸化物、例えば酸化カルシウム、酸化マグネシウム；アルカリ金属およびアルカリ土類金属の水素化物、例えば水素化ナトリウム、水素化カルシウム等；アルカリ金属のアミド、例えばリチウムアミド、ナトリウムアミド等；アルカリ金属およびアルカリ土類金属の炭酸塩、例えば炭酸ナトリウム、炭酸カリウム、炭酸カルシウム、炭酸マグネシウム等；アルカリ金属およびアルカリ土類金属の炭酸水素塩、例えば炭酸水素ナトリウム、炭酸水素カリウム；アルカリ金属アルキル、例えばメチルリチウム、ブチルリチウム、フェニルリチウム、メチルマグネシウムクロライド；アルカリ金属およびアルカリ土類金属のアルコキシド、例えばナトリウムメトキシド、ナトリウムエトキシド、カリウム-*t*-ブトキシド、ジメトキシマグネシウム等；有機塩基類、例えばトリエチルアミン、ピリジン、*N,N*-ジメチルアニリン、*N*-メチルピペリジン、ルチジン、4-ジメチルアミノピリジン等があげられ、トリエチルアミン、ピリジンが特に好適に使用できる。これらの塩基の使用量は特に制限されるものではないが、好ましくは一般式(3)で表わされるカルボン酸クロライド類に対して5モル%から20モル%過剰に使用する。

【0012】一般式(2)で表わされるヘテロ環置換アニリン類と一般式(3)で表わされるカルボン酸クロライド類は一般的には等モル量使用するが、収率改善のため一方を他方に対して1モル%から20モル%過剰に使用することもある。反応温度は0~150℃であり、好ましくは0~40℃である。ヘテロ環置換アニリン誘導体の置換基 R^1 として具体的には、水素原子、炭素数1から4のアルキル基であるメチル基、エチル基、イソプロピル基等、ハロゲン原子であるフッ素、塩素、臭素またはハロゲン原子、炭素数1から4のハロアルキル基であるトリフルオロメチル基、ジフルオロメチル基、フルオロメチル基、トリクロロメチル基またはペンタフルオロエチル基等があげられる。

【0013】 $He t$ として具体的には、任意の位置にアルキル基が置換していてもよいフリル基、例えば2-フリル、3-フリル、5-メチル-2-フリル、2-メチル-3-フリル基等；任意の位置にアルキル基が置換し

8

ていてもよいチエニル基、例えば2-チエニル、3-チエニル、5-メチル-2-チエニル、2-メチル-3-チエニル、3-メチル-2-チエニル、2, 5-ジメチル-3-チエニル基、5-イソプロピル-2-チエニル基等；任意の位置にアルキル基が置換していてもよいイソオキサゾリル基、例えば3-イソオキサゾリル、4-イソオキサゾリル、5-イソオキサゾリル、5-メチル-3-イソオキサゾリル、3-メチル-5-イソオキサゾリル基等；任意の位置にアルキル基が置換していてもよいイソチアゾリル基、例えば3-イソチアゾリル、4-イソチアゾリル、5-イソチアゾリル、5-メチル-3-イソチアゾリル、3-メチル-5-イソチアゾリル基、4-メチル-3-イソチアゾリル、3-メチル-4-イソチアゾリル基等；任意の位置にアルキル基が置換していてもよいピラゾリル基、例えば1-メチル-3-ピラゾリル、1-メチル-4-ピラゾリル、1-メチル-5-ピラゾリル、3-ピラゾリル、5-ピラゾリル基等；任意の位置にアルキル基が置換していてもよいオキサゾリル基、例えば2-オキサゾリル、4-オキサゾリル、5-オキサゾリル、2-メチル-4-オキサゾリル、2-メチル-5-オキサゾリル、4-メチル-5-オキサゾリル基等；任意の位置にアルキル基が置換していてもよいチアゾリル基、例えば2-チアゾリル、4-チアゾリル、5-チアゾリル、2-メチル-4-チアゾリル、2-メチル-5-チアゾリル、4-メチル-5-チアゾリル、5-メチル-4-チアゾリル基等；任意の位置にアルキル基が置換していてもよいピリジル基、例えば2-ピリジル、3-ピリジル、4-ピリジル、6-メチル-2-ピリジル基等；任意の位置にアルキル基が置換していてもよいピリミジニル基、例えば2-ピリミジニル、4-ピリミジニル、5-ピリミジニル、4, 6-ジメチル-2-ピリミジニル基等；任意の位置にアルキル基が置換していてもよいピラジニル基、例えば2-ピラジニル、3-メチル-2-ピラジニル基等；任意の位置にアルキル基が置換していてもよいピリダジニル基、例えば4-メチル-3-ピリダジニル、3-メチル-4-ピリダジニル基等があげられる。

【0014】一方、 R^2 として具体的には、炭素数1から4のアルキル基であるメチル基、エチル基、イソプロピル基等、ハロゲン原子であるフッ素、塩素、臭素またはハロゲン原子、炭素数1から4のハロアルキル基であるトリフルオロメチル基、ジフルオロメチル基、フルオロメチル基、トリクロロメチル基、ペンタフルオロエチル基があげられ、 R^3 として具体的には、炭素数1から4のアルキル基であるメチル基、エチル基、イソプロピル基等、炭素数1から4のハロアルキル基であるトリフルオロメチル基、ジフルオロメチル基、フルオロメチル基、トリクロロメチル基またはペンタフルオロエチル基があげられ、 R^4 として具体的には、ハロゲン原子であるフッ素、塩素、臭素またはハロゲン原子があげられる。

【0015】一方、Rとして具体的には、4位にトリフルオロメチル基、ジフルオロメチル基、塩素原子、臭素原子または沃素原子が置換し、2位はメチル基が置換していてもよい5-チアゾリル基、例えば2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアゾリル基、2-メチル-4-ジフルオロメチル-5-チアゾリル基、2-メチル-4-クロロ-5-チアゾリル基、2-メチル-4-ヨード-5-チアゾリル基、4-トリフルオロメチル-5-チアゾリル基等；3位にトリフルオロメチル基、ジフルオロメチル基、塩素原子、臭素原子または沃素原子が置換した1-メチル-4-ピラゾリル基；例えば1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ピラゾリル基、1-メチル-3-ジフルオロメチル-4-ピラゾリル基、1-メチル-3-クロロ-4-ピラゾリル基、1-メチル-3-プロモ-4-ピラゾリル基、1-メチル-3-ヨード-4-ピラゾリル基、3-トリフルオロメチル-4-ピラゾリル基等；4位および/または5位にメチルが置換していてもよい2-メチル-3-フリル基、例えば2-メチル-3-フリル基、2、5-ジメチル-3-フリル基、2、4、5-トリメチル-3-フリル基等；2位にメチル基、塩素原子、臭素原子または沃素原子が置換していてもよく、5位にメチルが置換していて*

第1表

He t	R
2-フリル	2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアゾリル
2-フリル	2-メチル-4-ジフルオロメチル-5-チアゾリル
2-フリル	4-トリフルオロメチル-5-チアゾリル
2-フリル	4-ヨード-5-チアゾリル
2-フリル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ピラゾリル
2-フリル	1-メチル-3-ヨード-4-ピラゾリル
2-フリル	2-メチル-3-フリル
2-フリル	2,5-ジメチル-3-フリル
2-フリル	3-メチル-2-チエニル
2-フリル	2-クロロフェニル
2-フリル	2-クロロ-3-ピリジル
2-フリル	3-クロロ-2-ピリジル
2-フリル	2-メチル-5,6-ジヒドロ-3-イリル
2-フリル	2-メチル-5,6-ジヒドロ-1,4-オキサチン-3-イリル
3-フリル	2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアゾリル
3-フリル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ピラゾリル
3-フリル	2-クロロフェニル
3-フリル	2-クロロ-3-ピリジル
3-フリル	3-クロロ-2-ピリジル
3-フリル	2-メチル-5,6-ジヒドロ-1,4-オキサチン-3-イリル

【0017】

【表2】

第1表 (つづき)

*もよい3-メチル-2-チエニル基、例えば3-メチル-2-チエニル基、3-クロロ-2-チエニル基、3-ヨード-2-チエニル、3-メチル-2-チエニル基等；2位にトリフルオロメチル基、メチル基、塩素原子、臭素原子または沃素原子が置換したフェニル基、例えば2-クロロフェニル基、2-プロモフェニル基、2-ヨードフェニル基、2-トリル基、2-トリフルオロメチルフェニル基等；2位に塩素原子、臭素原子または沃素原子が置換した3-ピリジル基、例えば2-クロロ-3-ピリジル基、2-プロモ-3-ピリジル基、2-ヨード-3-ピリジル基、2-クロロ-6-メチル-3-ピリジル基等；2位に塩素原子、臭素原子または沃素原子が置換した3-ピラジニル基、例えば3-クロロ-2-ピラジニル基、3-プロモ-2-ピラジニル基、3-ヨード-2-ピラジニル基等；2-メチル-5,6-ジヒドロピラン-3-イリル基、2-メチル-5,6-ジヒドロ-1,4-オキサチン-3-イリル基等が好ましい。特に好ましい一般式(1)の化合物を第1表(表1から表13)に列挙する。

【0016】

【表1】

He t	R
5-メチル-2-フリル	2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアゾリル
5-メチル-2-フリル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ヒ°ラゾリル
5-メチル-3-フリル	2-クロロフェニル
2-チエニル	2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアゾリル
2-チエニル	2-メチル-4-シ°フルオロメチル-5-チアゾリル
2-チエニル	4-トリフルオロメチル-5-チアゾリル
2-チエニル	4-ヨート°-5-チアゾリル
2-チエニル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ヒ°ラゾリル
2-チエニル	1-メチル-3-ヨート°-4-ヒ°ラゾリル
2-チエニル	2-メチル-3-フリル
2-チエニル	2, 5-シ°メチル-3-フリル
2-チエニル	3-メチル-2-チエニル
2-チエニル	2-クロロフェニル
2-チエニル	2-クロロ-3-ヒ°リジ°ル
2-チエニル	3-クロロ-2-ヒ°ラジ°ニル
2-チエニル	2-メチル-5, 6-シ°ヒト°ロヒ°ラン-3-イル
2-チエニル	2-メチル-5, 6-シ°ヒト°ロ-1, 4-オキサチン-3-イル
3-チエニル	2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアゾリル
3-チエニル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ヒ°ラゾリル
3-チエニル	2-クロロフェニル
3-チエニル	2-クロロ-3-ヒ°リジ°ル

【0018】

【表3】

第1表 (つづき)

He t	R
3-チエニル	3-クロロ-2-ヒ°ラジ°ニル
3-チエニル	2-メチル-5, 6-シ°ヒト°ロ-1, 4-オキサチン-3-イル
5-メチル-2-チエニル	2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアゾリル
5-メチル-2-チエニル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ヒ°ラゾリル
5-メチル-2-チエニル	2-クロロフェニル
5-メチル-2-チエニル	2-クロロ-3-ヒ°リジ°ル
5-メチル-2-チエニル	3-クロロ-2-ヒ°ラジ°ニル
5-メチル-2-チエニル	2-メチル-5, 6-シ°ヒト°ロ-1, 4-オキサチン-3-イル
5-メチル-4-チエニル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ヒ°ラゾリル
3-メチル-2-チエニル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ヒ°ラゾリル
4-メチル-3-チエニル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ヒ°ラゾリル
4-メチル-2-チエニル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ヒ°ラゾリル
2-エチル-3-チエニル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ヒ°ラゾリル
5-イソプロピ°ル-2-チエニル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ヒ°ラゾリル
3-イソオキサゾリル	2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアゾリル
3-イソオキサゾリル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ヒ°ラゾリル
3-イソオキサゾリル	1-メチル-3-ヨート°-4-ヒ°ラゾリル
3-イソオキサゾリル	2-メチル-3-フリル
3-イソオキサゾリル	3-メチル-2-チエニル
3-イソオキサゾリル	2-クロロフェニル
3-イソオキサゾリル	2-クロロ-3-ヒ°リジ°ル

【0019】

* * 【表4】

第1表 (つづき)

He t	R
3-イソオキサソ ⁺ リル	3-クロロ-2-ヒ ⁺ ラジ ⁺ ニル
3-イソオキサソ ⁺ リル	2-メチル-5, 6-ジ ⁺ ヒト ⁺ ロ-1, 4-オキサチン-3-イル
4-イソオキサソ ⁺ リル	2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアソ ⁺ リル
4-イソオキサソ ⁺ リル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ヒ ⁺ ラジ ⁺ リル
4-イソオキサソ ⁺ リル	1-メチル-3-ヨト ⁺ -4-ヒ ⁺ ラジ ⁺ リル
4-イソオキサソ ⁺ リル	2-メチル-3-フリル
4-イソオキサソ ⁺ リル	3-メチル-2-チエニル
4-イソオキサソ ⁺ リル	2-クロロフェニル
4-イソオキサソ ⁺ リル	2-クロロ-3-ヒ ⁺ ラジ ⁺ ニル
4-イソオキサソ ⁺ リル	3-クロロ-2-ヒ ⁺ ラジ ⁺ ニル
4-イソオキサソ ⁺ リル	2-メチル-5, 6-ジ ⁺ ヒト ⁺ ロヒ ⁺ ラン-3-イル
4-イソオキサソ ⁺ リル	2-メチル-5, 6-ジ ⁺ ヒト ⁺ ロ-1, 4-オキサチン-3-イル
5-イソオキサソ ⁺ リル	2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアソ ⁺ リル
5-イソオキサソ ⁺ リル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ヒ ⁺ ラジ ⁺ リル
5-イソオキサソ ⁺ リル	1-メチル-3-ヨト ⁺ -4-ヒ ⁺ ラジ ⁺ リル
5-イソオキサソ ⁺ リル	2-メチル-3-フリル
5-イソオキサソ ⁺ リル	3-メチル-2-チエニル
5-イソオキサソ ⁺ リル	2-クロロフェニル
5-イソオキサソ ⁺ リル	2-クロロ-3-ヒ ⁺ ラジ ⁺ ニル
5-イソオキサソ ⁺ リル	3-クロロ-2-ヒ ⁺ ラジ ⁺ ニル
5-イソオキサソ ⁺ リル	2-メチル-5, 6-ジ ⁺ ヒト ⁺ ロ-1, 4-オキサチン-3-イル

【0020】

【表5】

第1表 (つづき)

He t	R
5-メチル-3-イソオキサソ ⁺ リル	2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアソ ⁺ リル
5-メチル-3-イソオキサソ ⁺ リル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ヒ ⁺ ラジ ⁺ リル
5-メチル-3-イソオキサソ ⁺ リル	2-クロロフェニル
3-イソチアソ ⁺ リル	2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアソ ⁺ リル
3-イソチアソ ⁺ リル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ヒ ⁺ ラジ ⁺ リル
3-イソチアソ ⁺ リル	1-メチル-3-ヨト ⁺ -4-ヒ ⁺ ラジ ⁺ リル
3-イソチアソ ⁺ リル	2-メチル-3-フリル
3-イソチアソ ⁺ リル	3-メチル-2-チエニル
3-イソチアソ ⁺ リル	2-クロロフェニル
3-イソチアソ ⁺ リル	2-クロロ-3-ヒ ⁺ ラジ ⁺ ニル
3-イソチアソ ⁺ リル	3-クロロ-2-ヒ ⁺ ラジ ⁺ ニル
3-イソチアソ ⁺ リル	2-メチル-5, 6-ジ ⁺ ヒト ⁺ ロヒ ⁺ ラン-3-イル
3-イソチアソ ⁺ リル	2-メチル-5, 6-ジ ⁺ ヒト ⁺ ロ-1, 4-オキサチン-3-イル
4-イソチアソ ⁺ リル	2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアソ ⁺ リル
4-イソチアソ ⁺ リル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ヒ ⁺ ラジ ⁺ リル
4-イソチアソ ⁺ リル	1-メチル-3-ヨト ⁺ -4-ヒ ⁺ ラジ ⁺ リル
4-イソチアソ ⁺ リル	2-メチル-3-フリル

15

4-イソチアゾリル
4-イソチアゾリル
4-イソチアゾリル
4-イソチアゾリル

16

3-メチル-2-チエニル
2-クロロフェニル
2-クロロ-3-ヒ°リジ°ル
3-クロロ-2-ヒ°ラジ°ニル

【0021】

* * 【表6】

第1表 (つづき)

H e t	R
4-イソチアゾリル	2-メチル-5, 6-ジ°ヒト°ロヒ°ラン-3-イル
4-イソチアゾリル	2-メチル-5, 6-ジ°ヒト°ロ-1, 4-オキサチン-3-イル
5-イソチアゾリル	2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアゾリル
5-イソチアゾリル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ヒ°ラジ°ル
5-イソチアゾリル	1-メチル-3-ヨート°-4-ヒ°ラジ°ル
5-イソチアゾリル	2-メチル-3-フリル
5-イソチアゾリル	3-メチル-2-チエニル
5-イソチアゾリル	2-クロロフェニル
5-イソチアゾリル	2-クロロ-3-ヒ°リジ°ル
5-イソチアゾリル	3-クロロ-2-ヒ°ラジ°ニル
5-イソチアゾリル	2-メチル-5, 6-ジ°ヒト°ロヒ°ラン-3-イル
5-イソチアゾリル	2-メチル-5, 6-ジ°ヒト°ロ-1, 4-オキサチン-3-イル
5-メチル-3-イソチアゾリル	2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアゾリル
5-メチル-3-イソチアゾリル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ヒ°ラジ°ル
5-メチル-3-イソチアゾリル	2-クロロフェニル
1-メチル-3-ヒ°ラジ°ル	2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアゾリル
1-メチル-3-ヒ°ラジ°ル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ヒ°ラジ°ル
1-メチル-3-ヒ°ラジ°ル	1-メチル-3-ヨート°-4-ヒ°ラジ°ル
1-メチル-3-ヒ°ラジ°ル	2-メチル-3-フリル
1-メチル-3-ヒ°ラジ°ル	3-メチル-2-チエニル
1-メチル-3-ヒ°ラジ°ル	2-クロロフェニル

【0022】

【表7】

第1表 (つづき)

H e t	R
1-メチル-3-ヒ°ラジ°ル	2-クロロ-3-ヒ°リジ°ル
1-メチル-3-ヒ°ラジ°ル	3-クロロ-2-ヒ°ラジ°ニル
1-メチル-3-ヒ°ラジ°ル	2-メチル-5, 6-ジ°ヒト°ロヒ°ラン-3-イル
1-メチル-3-ヒ°ラジ°ル	2-メチル-5, 6-ジ°ヒト°ロ-1, 4-オキサチン-3-イル
1-メチル-5-ヒ°ラジ°ル	2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアゾリル
1-メチル-5-ヒ°ラジ°ル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ヒ°ラジ°ル
1-メチル-5-ヒ°ラジ°ル	1-メチル-3-ヨート°-4-ヒ°ラジ°ル
1-メチル-5-ヒ°ラジ°ル	2-クロロフェニル
1-メチル-5-ヒ°ラジ°ル	2-クロロ-3-ヒ°リジ°ル
1-メチル-5-ヒ°ラジ°ル	3-クロロ-2-ヒ°ラジ°ニル
1-メチル-5-ヒ°ラジ°ル	2-メチル-5, 6-ジ°ヒト°ロ-1, 4-オキサチン-3-イル
2-オキサゾリル	2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアゾリル
2-オキサゾリル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ヒ°ラジ°ル

17

2-オキサゾ⁺リル
 2-オキサゾ⁺リル
 2-オキサゾ⁺リル
 2-オキサゾ⁺リル
 2-オキサゾ⁺リル
 2-オキサゾ⁺リル
 2-オキサゾ⁺リル
 4-オキサゾ⁺リル

18

1-メチル-3-ヨート⁻4-ヒ⁺ラゾ⁺リル
 2-メチル-3-フリル
 3-メチル-2-チエニル
 2-クロロフェニル
 2-クロロ-3-ヒ⁺リジ⁺ル
 3-クロロ-2-ヒ⁺ラジ⁺ニル
 2-メチル-5, 6-ジ⁺ヒト⁺ロ-1, 4-オキサチン-3-イル
 2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアゾ⁺リル

【0023】

* 10 * 【表 8】

第 1 表 (つづき)

H e t	R
4-オキサゾ ⁺ リル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ヒ ⁺ ラゾ ⁺ リル
4-オキサゾ ⁺ リル	1-メチル-3-ヨート ⁻ 4-ヒ ⁺ ラゾ ⁺ リル
4-オキサゾ ⁺ リル	2-メチル-3-フリル
4-オキサゾ ⁺ リル	3-メチル-2-チエニル
4-オキサゾ ⁺ リル	2-クロロフェニル
4-オキサゾ ⁺ リル	2-クロロ-3-ヒ ⁺ リジ ⁺ ル
4-オキサゾ ⁺ リル	3-クロロ-2-ヒ ⁺ ラジ ⁺ ニル
4-イソオキサゾ ⁺ リル	2-メチル-5, 6-ジ ⁺ ヒト ⁺ ロ-1, 4-オキサチン-3-イル
5-オキサゾ ⁺ リル	2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアゾ ⁺ リル
5-オキサゾ ⁺ リル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ヒ ⁺ ラゾ ⁺ リル
5-オキサゾ ⁺ リル	2-クロロフェニル
5-オキサゾ ⁺ リル	2-クロロ-3-ヒ ⁺ リジ ⁺ ル
5-オキサゾ ⁺ リル	3-クロロ-2-ヒ ⁺ ラジ ⁺ ニル
5-オキサゾ ⁺ リル	2-メチル-5, 6-ジ ⁺ ヒト ⁺ ロ-1, 4-オキサチン-3-イル
2-メチル-3-オキサゾ ⁺ リル	2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアゾ ⁺ リル
2-チアゾ ⁺ リル	2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアゾ ⁺ リル
2-チアゾ ⁺ リル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ヒ ⁺ ラゾ ⁺ リル
2-チアゾ ⁺ リル	1-メチル-3-ヨート ⁻ 4-ヒ ⁺ ラゾ ⁺ リル
2-チアゾ ⁺ リル	2-メチル-3-フリル
2-チアゾ ⁺ リル	3-メチル-2-チエニル
2-チアゾ ⁺ リル	2-クロロフェニル

【0024】

【表 9】

第 1 表 (つづき)

H e t	R
2-チアゾ ⁺ リル	2-クロロ-3-ヒ ⁺ リジ ⁺ ル
2-チアゾ ⁺ リル	3-クロロ-2-ヒ ⁺ ラジ ⁺ ニル
2-チアゾ ⁺ リル	2-メチル-5, 6-ジ ⁺ ヒト ⁺ ロ-1, 4-オキサチン-3-イル
4-チアゾ ⁺ リル	2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアゾ ⁺ リル
4-チアゾ ⁺ リル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ヒ ⁺ ラゾ ⁺ リル
4-チアゾ ⁺ リル	1-メチル-3-ヨート ⁻ 4-ヒ ⁺ ラゾ ⁺ リル
4-チアゾ ⁺ リル	2-メチル-3-フリル
4-チアゾ ⁺ リル	3-メチル-2-チエニル
4-チアゾ ⁺ リル	2-クロロフェニル

19

20

4-チアゾリル	2-クロロ-3-ヒ°リジ°ル
4-チアゾリル	3-クロロ-2-ヒ°ラジ°ニル
4-チアゾリル	2-メチル-5, 6-ジ°ヒト°ロ-1, 4-オキサチン-3-イル
5-チアゾリル	2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアゾリル
5-チアゾリル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ヒ°ラジ°リル
5-チアゾリル	2-クロロフェニル
5-チアゾリル	2-クロロ-3-ヒ°リジ°ル
5-チアゾリル	3-クロロ-2-ヒ°ラジ°ニル
5-チアゾリル	2-メチル-5, 6-ジ°ヒト°ロ-1, 4-オキサチン-3-イル
2-メチル-4-チアゾリル	2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアゾリル
2-ヒ°リジ°ル	2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアゾリル
2-ヒ°リジ°ル	4-トリフルオロメチル-5-チアゾリル

【0025】

* * 【表10】

第1表 (つづき)

He t	R
2-ヒ°リジ°ル	4-ヨト°-5-チアゾリル
2-ヒ°リジ°ル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ヒ°ラジ°リル
2-ヒ°リジ°ル	1-メチル-3-ヨト°-4-ヒ°ラジ°リル
2-ヒ°リジ°ル	2-メチル-3-フリル
2-ヒ°リジ°ル	3-メチル-2-チエニル
2-ヒ°リジ°ル	2-クロロフェニル
2-ヒ°リジ°ル	2-クロロ-3-ヒ°リジ°ル
2-ヒ°リジ°ル	3-クロロ-2-ヒ°ラジ°ニル
2-ヒ°リジ°ル	2-メチル-5, 6-ジ°ヒト°ロ-1, 4-オキサチン-3-イル
3-ヒ°リジ°ル	2-クロロ-3-ヒ°リジ°ル
4-ヒ°リジ°ル	2-クロロ-3-ヒ°リジ°ル
6-メチル-2-ヒ°リジ°ル	2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアゾリル
6-メチル-2-ヒ°リジ°ル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ヒ°ラジ°リル
2-ヒ°リミジ°ニル	2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアゾリル
2-ヒ°リミジ°ニル	4-トリフルオロメチル-5-チアゾリル
2-ヒ°リミジ°ニル	4-ヨト°-5-チアゾリル
2-ヒ°リミジ°ニル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ヒ°ラジ°リル
2-ヒ°リミジ°ニル	1-メチル-3-ヨト°-4-ヒ°ラジ°リル
2-ヒ°リミジ°ニル	2-メチル-3-フリル
2-ヒ°リミジ°ニル	3-メチル-2-チエニル
2-ヒ°リミジ°ニル	2-クロロフェニル

【0026】

【表11】

第1表 (つづき)

He t	R
2-ヒ°リミジ°ニル	2-クロロ-3-ヒ°リジ°ル
2-ヒ°リミジ°ニル	3-クロロ-2-ヒ°ラジ°ニル
2-ヒ°リミジ°ニル	2-メチル-5, 6-ジ°ヒト°ロ-1, 4-オキサチン-3-イル
4-ヒ°リミジ°ニル	2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアゾリル
4-ヒ°リミジ°ニル	4-トリフルオロメチル-5-チアゾリル

21

4-ヒ°リミジ°ニル
 4-ヒ°リミジ°ニル
 4-ヒ°リミジ°ニル
 4-ヒ°リミジ°ニル
 4-ヒ°リミジ°ニル
 4-ヒ°リミジ°ニル
 4-ヒ°リミジ°ニル
 4-ヒ°リミジ°ニル
 5-ヒ°リミジ°ニル
 5-ヒ°リミジ°ニル
 5-ヒ°リミジ°ニル
 5-ヒ°リミジ°ニル
 5-ヒ°リミジ°ニル
 5-ヒ°リミジ°ニル
 5-ヒ°リミジ°ニル

22

4-ヨート°-5-チアソ°リル
 1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ヒ°ラソ°リル
 1-メチル-3-ヨート°-4-ヒ°ラソ°リル
 2-メチル-3-フリル
 3-メチル-2-チエニル
 2-クロロフェニル
 2-クロロ-3-ヒ°リジ°ル
 3-クロロ-2-ヒ°ラジ°ニル
 2-メチル-5, 6-ジ°ヒト°ロ-1, 4-オキサチン-3-イル
 2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアソ°リル
 1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ヒ°ラソ°リル
 1-メチル-3-ヨート°-4-ヒ°ラソ°リル
 2-メチル-3-フリル
 3-メチル-2-チエニル
 2-クロロフェニル
 2-クロロ-3-ヒ°リジ°ル

【0027】

* * 【表12】

第1表 (つづき)

He t	R
5-ヒ°リミジ°ニル	3-クロロ-2-ヒ°ラジ°ニル
5-ヒ°リミジ°ニル	2-メチル-5, 6-ジ°ヒト°ロ-1, 4-オキサチン-3-イル
4, 6-ジ°メチル-2-ヒ°リミジ°ニル	2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアソ°リル
4, 6-ジ°メチル-2-ヒ°リミジ°ニル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ヒ°ラソ°リル
2-ヒ°ラジ°ニル	2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアソ°リル
2-ヒ°ラジ°ニル	4-トリフルオロメチル-5-チアソ°リル
2-ヒ°ラジ°ニル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ヒ°ラソ°リル
2-ヒ°ラジ°ニル	1-メチル-3-ヨート°-4-ヒ°ラソ°リル
2-ヒ°ラジ°ニル	2-メチル-3-フリル
2-ヒ°ラジ°ニル	3-メチル-2-チエニル
2-ヒ°ラジ°ニル	2-クロロフェニル
2-ヒ°ラジ°ニル	2-クロロ-3-ヒ°リジ°ル
2-ヒ°ラジ°ニル	3-クロロ-2-ヒ°ラジ°ニル
2-ヒ°ラジ°ニル	2-メチル-5, 6-ジ°ヒト°ロ-1, 4-オキサチン-3-イル
3-メチル-2-ヒ°ラジ°ニル	2-クロロ-3-ヒ°リジ°ル
5, 6-ジ°メチル-2-ヒ°ラジ°ニル	2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアソ°リル
2-ヒ°リタ°ジ°ニル	2-メチル-4-トリフルオロメチル-5-チアソ°リル
2-ヒ°リタ°ジ°ニル	4-トリフルオロメチル-5-チアソ°リル
2-ヒ°リタ°ジ°ニル	1-メチル-3-トリフルオロメチル-4-ヒ°ラソ°リル
2-ヒ°リタ°ジ°ニル	1-メチル-3-ヨート°-4-ヒ°ラソ°リル
2-ヒ°リタ°ジ°ニル	2-クロロフェニル

【0028】

【表13】

第1表 (つづき)

He t	R
2-ヒ°リタ°ジ°ニル	2-メチル-3-フリル

2-ヒタジニル
2-ヒタジニル
2-ヒタジニル
2-ヒタジニル
2-ヒタジニル

3-メチル-2-チニル
2-クロロエニル
2-クロロ-3-ヒタジニル
3-クロロ-2-ヒタジニル
2-メチル-5,6-ジヒドロ-1,4-ナフチン-3-イル

【0029】本発明は一般式(1)で表わされる化合物は、キュウリ、トマト、イチゴ、ブドウ等の灰色かび病(*Botrytis cinerea*)の他、ウリ類のうどんこ病(*Sphaerotheca fuliginea*)、ムギ類のうどんこ病(*Erysiphe graminis* f. sp. *hordei*, f. sp. *tritici*)、イチゴうどんこ病(*Sphaerotheca humuli*)、ブドウうどんこ病(*Uncinula necator*)、リンゴうどんこ病(*Podosphaera leucotricha*)、リンゴ黒星病(*Venturia inaequalis*)、ナシ黒星病(*Venturia nashicola*)、リンゴ赤星病(*Gymnosporangium yamadae*)、ナシ黒斑病(*Alternaria kikuchiana*)、リンゴ斑点落葉病(*Alternaria mali*)、ムギ類のさび病(*Puccinia striiformis*, *P. graminis*, *P. recondita*, *P. hordei*)等に対し優れた防除効果を示す。

【0030】本発明に係わる一般式(1)で表わされる化合物を農園芸用殺菌剤として使用する場合は、処理する植物に対して原体をそのまま使用してもよいが、一般には不活性な液体担体または固体担体と混合し、通常用いられる製剤形態である粉剤、水和剤、フロワブル剤、乳剤、粒剤およびその他の一般に慣用される形態の製剤として使用される。更に製剤上必要ならば補助剤を添加することもできる。ここでいう担体とは、処理すべき部位への有効成分の到達を助け、また有効成分化合物の貯蔵、輸送、取扱いを容易にするために配合される合成または天然の無機または有機物質を意味する。担体としては、通常農園芸用殺菌剤に使用されるものであるならば固体または液体のいずれでも使用でき、特定のものに限定されるものではない。

【0031】例えば、固体担体としては、モンモリロナイト、カオリナイト等の粘土類、珪藻土、白土、タルク、パーミキュライト、石膏、炭酸カルシウム、シリカゲル、硫安等の無機物質、大豆粉、鋸屑、小麦粉等の植物性有機物質および尿素等があげられる。液体担体としては、トルエン、キシレン、クメン等の芳香族炭化水素類、ケロシン、鉱油などのパラフィン系炭化水素類、アセトン、メチルエチルケトンなどのケトン類、ジオキサン、ジエチレングリコールジメチルエーテルなどのエーテル類、メタノール、エタノール、プロパノール、エチレングリコールなどのアルコール類、ジメチルホルムアミド、ジメチルスルホキシドおよび水等があげられる。

【0032】更に本発明化合物の効力を増強するために、製剤の剤型、適用場面等を考慮して目的に応じてそれぞれ単独に、または組み合わせて次の様な補助剤を使用することも出来る。補助剤としては、通常農園芸用薬

剤に使用される界面活性剤、結合剤(例えば、リグニンスルホン酸、アルギン酸、ポリビニルアルコール、アラビアゴム、CMCナトリウム等)、安定剤(例えば、酸化防止用にフェノール系化合物、チオール系化合物または高級脂肪酸エステル等を用いたり、pH調整剤として燐酸塩を用いたり、時に光安定剤も用いる)等を必要に応じて単独または組み合わせて使用出来る。更に場合によっては防菌防黴のために工業用殺菌剤、防菌防黴剤などを添加することもできる。

【0033】補助剤について更に詳しく述べる。乳化、分散、拡張、湿潤、結合、安定化等の目的ではリグニンスルホン酸塩、アルキルベンゼンスルホン酸塩、アルキル硫酸エステル塩、ポリオキシアルキレンアルキル硫酸塩、ポリオキシアルキレンアルキルリン酸エステル塩等のアニオン性界面活性剤、ポリオキシアルキレンアルキルエーテル、ポリオキシアルキレンアルキルアリアルエーテル、ポリオキシアルキレンアルキルアミン、ポリオキシアルキレンアルキルアミド、ポリオキシアルキレンアルキルアミド、ポリオキシアルキレンアルキルチオエーテル、ポリオキシアルキレン脂肪酸エステル、グリセリン脂肪酸エステル、ソルビタン脂肪酸エステル、ポリオキシアルキレンソルビタン脂肪酸エステル、ポリオキシシプロピレンポリオキシエチレンブロックポリマー等の非イオン性界面活性剤、ステアリン酸カルシウム、ワックス等の滑剤、イソプロピルヒドロジェンホスフェート等の安定剤、その他メチルセルロース、カルボキシメチルセルロース、カゼイン、アラビアゴム等があげられる。しかし、これらの成分は以上のものに限定されるものではない。

【0034】本発明に係わる農園芸用殺菌剤における一般式(1)で表わされる化合物の含有量は、製剤形態によっても異なるが、通常粉剤では0.05~20重量%、水和剤では0.1~80重量%、乳剤では1~50重量%、フロワブル製剤では1~50重量%、ドライフロワブル製剤では1~80重量%であり、好ましくは、粉剤では0.5~5重量%、水和剤では5~80重量%、粒剤では0.5~8重量%、乳剤では5~20重量%、フロワブル製剤では5~30重量%およびドライフロワブル製剤では5~50重量%である。補助剤の含有量は0~80重量%であり、担体の含有量は、100重量%から有効成分化合物および補助剤の含有量を差し引いた量である。

【0035】本発明組成物の施用方法としては種子消毒、茎葉散布等があげられるが、通常当業者が利用する

どの様な施用方法にても十分な効力を発揮する。施用量および施用濃度は対象作物、対象病害、病害の発生程度、化合物の剤型、施用方法および各種環境条件等によって変動するが、散布する場合には有効成分量としてヘクタール当たり50~1,000gが適当であり、望ましくはヘクタール当たり100~500gである。また水和剤、フロワブル剤または乳剤を水で希釈して散布する場合、その希釈倍率は200~20,000倍が適当であり、望しくは1,000~5,000倍である。

【0036】本発明の農園芸用殺菌剤は他の殺菌剤、殺虫剤、除草剤および植物成長調節剤等の農薬、土壤改良剤または肥効物質との混合使用は勿論のこと、これらとの混合製剤も可能である。殺菌剤としては例えば、トリアジメホン、ヘキサコナゾール、プロクロラズ、トリフルミゾール等のアゾール系殺菌剤、メタラキシル、オキサディキシル等のアシルアラニン系殺菌剤、チオファネートメチル、ペノミル等のベンズイミダゾール系殺菌剤、マンゼブ等のジチオカーバメート系殺菌剤およびテトラクロロイソフタロニトリル、硫黄等があげられ、殺虫剤としては例えば、フェントロチオン、ダイアジノン、ピリダフェンチオン、クロルピリホス、マラソン、フェントエート、ジメトエート、メチルチオメトン、プロチオホス、DDVP、アセフェート、サリチオン、EPN等リン系殺虫剤、NAC、MTMC、BPMC、ピリミカーブ、カルボスルファン、メソミル等のカーバメート系殺虫剤およびエトフェンプロックス、ベルメトリン、フェンバレート等のピレスロイド系殺虫剤等があげられるが、これに限定されるものではない。

【0037】

【実施例】次に実施例を挙げて本発明の化合物を更に具体的に説明する。

実施例1

N-{2-(2-チエニル)フェニル}-2-クロロニコチン酸アミド(化合物番号1)

2-クロロニコチン酸0.6gを塩化チオニル5mlとともに1.5時間加熱還流し、減圧濃縮してカルボン酸クロライドを調製した。これをテトラヒドロフラン10mlに溶解し、ピリジン0.53gを添加する。この溶液に2-(2-チエニル)アニリン0.56gのテトラヒドロフラン1ml溶液を加え、室温で1時間攪拌した。反応液を氷水中に排出し、酢酸エチルで抽出、有機層を5%塩酸、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液で順次洗浄後、硫酸マグネシウムで乾燥した。減圧濃縮して溶媒を留去し、吸引ろ過して目的物0.71g(収率76%)を得た。融点132~133℃

¹H-NMR(CDCl₃, δ値):7.11~7.19(m, 2H), 7.23(m, 1H), 7.35~7.47(m, 4H), 8.17(dd, J=7.4, 2.2Hz, 1H), 8.46~8.54(m, 3H)

【0038】実施例2

N-{2-(5-メチル-2-チエニル)フェニル}-

2-クロロニコチン酸アミド(化合物番号2)

2-クロロニコチン酸0.75gを塩化チオニル6mlとともに1.5時間加熱還流し、減圧濃縮してカルボン酸クロライドを調製した。これをテトラヒドロフラン10mlに溶解し、ピリジン0.53gを添加する。この溶液に2-(5-メチル-2-チエニル)アニリン0.7gのテトラヒドロフラン1ml溶液を加え、室温で1時間攪拌した。反応液を氷水中に排出し、酢酸エチルで抽出、有機層を5%塩酸、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液で順次洗浄後、硫酸マグネシウムで乾燥した。減圧濃縮して溶媒を留去し、得られるオイル状物をカラムクロマトグラフィー(酢酸エチル/n-ヘキサン=3/7で溶出)で精製して目的物0.5g(収率42%)を得た。融点117~118℃

¹H-NMR(CDCl₃, δ値):2.54(s, 3H), 6.75(d, J=2.2, 1H), 6.91(d, J=3.6, 1H), 7.20(m, 1H), 7.35~7.44(m, 3H), 8.16(dd, J=7.3, 2.2, 1H), 8.46(m, 2H), 8.60(brs, 1H)

【0039】実施例3

N-{2-(2-ピリジル)フェニル}-2-クロロニコチン酸アミド(化合物番号3)

2-クロロニコチン酸0.6gより実施例1と同様にしてカルボン酸クロライドを調製する。これをテトラヒドロフラン10mlに溶解し、ピリジン0.53gを添加し、この溶液に2-(2-ピリジル)アニリン0.52gのテトラヒドロフラン1ml溶液を加え、室温で1時間攪拌した。反応液を氷水中に排出し、酢酸エチルで抽出し、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液で洗浄後、硫酸マグネシウムで乾燥した。減圧濃縮して溶媒を留去し、吸引ろ過して目的物0.62g(収率64%)を得た。融点120~121.5℃

¹H-NMR(CDCl₃, δ値):7.24~7.28(m, 3H), 7.34~7.38(m, 1H), 7.47~7.52(m, 1H), 7.71(dd, J=8.1, 1.5, 1H), 7.78(d, J=8.1, 1H), 7.84~7.88(m, 1H), 8.05(dd, J=8.1, 1.5, 1H), 8.45~8.50(m, 2H), 8.68(d, J=8.8, 1H)

【0040】実施例4

N-{2-(3-ピリジル)フェニル}-2-クロロニコチン酸アミド(化合物番号4)

アニリン成分として2-(3-ピリジル)アニリンを用いた他は、実施例1と全く同様にして反応を行い、目的物0.52g(収率54%)を得た。融点169~170.5℃

¹H-NMR(CDCl₃, δ値):7.29~7.41(m, 4H), 7.49~7.53(m, 1H), 7.78(dd, J=8.1, 2.2, 1H), 8.11(dd, J=8.1, 2.2, 1H), 8.29(d, J=8.1, 2H), 8.41(m, 1H), 8.58~8.62(m, 2H)

【0041】実施例5

N-{2-(4-ピリジル)フェニル}-2-クロロニコチン酸アミド(化合物番号5)

アニリン成分として2-(4-ピリジル)アニリンを用いた他は、実施例1と全く同様にして反応を行い、目的物0.4g(収率42%)を得た。融点161~163

℃

¹H-NMR(CDCl₃, δ 値): 7.28~7.37(m, 5H), 7.51(m, 1H), 8.09(m, 1H), 8.18(brs, 1H), 8.28(d, J=8.0, 1H), 8.44(dd, J=5.1, 2.2, 1H), 8.66(m, 2H)

【0042】実施例6

N-(2-(2-チエニル)フェニル)-1-メチル-3-トリフルオロメチルピラゾール-4-カルボン酸アミド(化合物番号6)

1-メチル-3-トリフルオロメチルピラゾール-4-カルボン酸0.25gを塩化チオニル3mlとともに1.5時間加熱還流し、減圧濃縮してカルボン酸クロライドを調製した。これをテトラヒドロフラン7mlに溶解し、ピリジン0.2gを添加する。この溶液に2-(2-チエニル)アニリン0.23gのテトラヒドロフラン1ml溶液を加え、室温で1時間攪拌した。反応液を氷水中に排出し、酢酸エチルで抽出、有機層を5%塩酸、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液で順次洗浄後、硫酸マグネシウムで乾燥した。減圧濃縮して溶媒を留去し、吸引ろ過して目的物0.36g(収率78%)を得た。

融点170~172℃

¹H-NMR(CDCl₃, δ 値): 3.96(s, 3H), 7.11~7.25(m, 2H), 7.32~7.46(m, 4H), 7.84(s, 1H), 7.91(brs, 1H), 8.35(d, J=8.0, 1H)

第2表

化合物 番 号	H e t	R	融点 (℃)
1	2-チエニル	2-クロロ-3-ピリジル	132~133
2	5-メチル-2-チエニル	2-クロロ-3-ピリジル	117~118
3	2-ピリジル	2-クロロ-3-ピリジル	120~121.5
4	3-ピリジル	2-クロロ-3-ピリジル	169~170.5
5	4-ピリジル	2-クロロ-3-ピリジル	161~163
6	2-チエニル	1-メチル-3-トリフルオロメチル ピラゾール-4-イル	171.5~173
7	2-ピリジル	1-メチル-3-トリフルオロメチル ピラゾール-4-イル	油
8	2-チエニル	2-クロロフェニル	107~108
9	2-チエニル	2-メチル-4-トリフルオロメチル チアゾール-5-イル	103~104
10	2-オキサゾリル	1-メチル-3-トリフルオロメチル ピラゾール-4-イル	195~198
11	2-オキサゾリル	2-メチル-4-トリフルオロメチル チアゾール-5-イル	125~127
12	5-オキサゾリル	1-メチル-3-トリフルオロメチル ピラゾール-4-イル	132~133
13	5-オキサゾリル	2-メチル-4-トリフルオロメチル チアゾール-5-イル	152~153

【0046】

第2表(つづき)

*8, 1H)

【0043】実施例7

N-(2-(2-ピリジル)フェニル)-1-メチル-3-トリフルオロメチルピラゾール-4-カルボン酸アミド(化合物番号7)

1-メチル-3-トリフルオロメチルピラゾール-4-カルボン酸0.46gを塩化チオニル3mlとともに1.5時間加熱還流し、減圧濃縮してカルボン酸クロライドを調製した。これをテトラヒドロフラン7mlに溶解し、ピリジン0.2gを添加する。この溶液に2-(2-ピリジル)アニリン0.5gのテトラヒドロフラン1ml溶液を加え、室温で1時間攪拌した。反応液を氷水中に排出し、酢酸エチルで抽出、有機層を飽和炭酸水素ナトリウム水溶液で洗浄後、硫酸マグネシウムで乾燥した。減圧濃縮して溶媒を留去し、吸引ろ過して目的物0.59g(収率80%)を得た。

【0044】¹H-NMR(CDCl₃, δ 値): 3.93(s, 3H), 7.10(d, J=8.1, 1H), 7.37~7.48(m, 8H), 8.37(s, 1H)

このような実施例によって製造される本発明の化合物のいくつかを第2表(表14、15)に示す。

【0045】

【表14】

【表15】

化合物 番 号	H e t	R	融点 (°C)
14	2-フリル	1-メチル-3-トリフルオロメチル ヒラゾール-4-イル	134~135
15	2-フリル	2-メチル-4-トリフルオロメチル チアゾール-5-イル	129~130
16	3-イソオキサリル	2-メチル-4-トリフルオロメチル チアゾール-5-イル	165~167
17	4-ピリミジニル	2-メチル-4-トリフルオロメチル チアゾール-5-イル	200~202
18	4-ピリミジニル	2-クロロフェニル	139~142
19	4-ピリミジニル	1-メチル-3-トリフルオロメチル ヒラゾール-4-イル	192.5~194.5
20	5-ピリミジニル	1-メチル-3-トリフルオロメチル ヒラゾール-4-イル	193~195

【0047】参考例1

N-(2-イソプロピルフェニル)-2-メチル-4-トリフルオロメチルチアゾール-5-カルボン酸アミド (対照化合物A、特開平5-221, 994号公報記載)

カルボン酸として2-メチル-4-トリフルオロメチルチアゾール-5-カルボン酸を、アニリンとして2-イソプロピルアニリンを用いた以外は実施例1と全く同様の方法で合成した。融点114~115℃。

【0048】参考例2

N-(2-イソプロピルフェニル)-2-クロロニコチン酸アミド (対照化合物B、特開平5-221, 994号公報記載)

アニリンとして2-イソプロピルアニリンを用いた以外は実施例1と全く同様にして合成した。融点123~124.5℃。

製剤例および生理試験例

次に本発明に係わる農園芸用殺菌剤の製剤例および試験例を示す。

【0049】製剤例1 粉剤

化合物番号1の化合物3部、ケイソウ土20部、白土30部およびタルク47部を均一に粉砕混合して粉剤100部を得た。

【0050】製剤例2 水和剤

化合物番号1の化合物25部、ケイソウ土47部、白土25部、リグニンスルホン酸ナトリウム1部およびアルキルベンゼンスルホン酸ナトリウム2部を均一に粉砕混合して水和剤100部を得た。

【0051】製剤例3 水和剤

化合物番号1の化合物50部、タルク40部、ラウリルリン酸ナトリウム5部およびアルキルナフタレンスルホン酸ナトリウム5部を混合し、水和剤100部を得た。

【0052】製剤例4 水和剤

化合物番号2の化合物50部、リグニンスルホン酸ナトリウム10部、アルキルナフタレンスルホン酸ナトリウム5部、ホワイトカーボン10部およびケイソウ土25部を混合粉砕し、水和剤100部を得た。

【0053】製剤例5 乳剤

化合物番号2の化合物10部、シクロヘキサン10部、キシレン60部およびソルボール(東邦化学製界面活性剤)20部を均一に溶解混合し、乳剤100部を得た。

【0054】製剤例6 フロワブル剤

化合物番号2の化合物40部、カルボキシメチルセルロース3部、リグニンスルホン酸ナトリウム2部、ジオクチルスルホサクシネートナトリウム塩1部および水54部をサンドグラインダーで湿式粉砕し、フロワブル剤100部を得た。次に本発明化合物の農園芸用殺菌剤としての効力を試験例によって説明する。なお試験例においては、上記参考例の化合物を対照剤として用いた。

【0055】試験例1 インゲン灰色かび病防除試験

温室内で直径7.5cmのプラスチックポットに子葉の展開まで2本ずつ生育させたインゲン(品種:つるなしトックロップ)に、製剤例3に準じて調製した水和剤を所定濃度に希釈して、4ポット当たり50mlずつ散布した。薬液が乾いた後PDA培地上で培養した灰色かび菌(MBC耐性)から調製した分生孢子懸濁液(1×10⁵個/ml)を子葉上に噴霧接種し、20~23℃、湿度95%以上の温室に7日間保った。接種7日後、インゲン1葉あたりに灰色かび病の病斑が占める面積を次の指標に従って調査した。結果を第3表(表16、17)に示す。

【0056】なお、対照化合物Aとして、N-(2-イソプロピルフェニル)-2-メチル-4-トリフルオロメチルチアゾール-5-カルボン酸アミド(特開平5-

31

221, 994号公報記載)および対照化合物Bとして、N-(2-イソプロピルフェニル)-2-クロニコチン酸アミド(特開平5-221, 994号公報記載)を用いた。

【0057】

発病度 0:発病なし

1:病斑の面積が5%以下

2:病斑の面積が5~25%

*

第3表

化合物番号	有効成分濃度 (ppm)	防除率 (%)
1	200	100
	50	100
2	200	100
	50	100
3	200	100
	50	100
6	200	100
	50	100
7	200	100
	50	100
9	200	100
	50	100
14	200	100
	50	100

【0059】

※ ※【表17】

第3表 (つづき)

化合物番号	有効成分濃度 (ppm)	防除率 (%)
15	200	100
	50	100
対照化合物 A	200	90
	50	65
対照化合物 B	200	27
	50	0

【0060】試験例2 イチゴ灰色かび病防除試験
温室内で直径9cmの素焼き鉢に結実まで生育させたイチゴ(品種:女峰)に、製剤例3に準じて調製した水和

剤を所定濃度に希釈して、3ポット当たり50mlずつ散布した。薬液が乾いた後PDA培地上で培養した灰色かび菌(MBC耐性)から調製した分生孢子懸濁液(1

×10⁵ 個/ml) を鉢全体に噴霧接種し、20～23℃、湿度95%以上の暗所に1日置いた後20～23℃の温室に7日間保った。接種8日後、全ての果実について発病の程度を果実1個あたりに灰色かび病の病斑が占める面積を次の指標に従って調査した。結果を第4表(表18、19)に示す。対照化合物AおよびBは試験例1と同様である。

【0061】

発病度 0:発病なし

* 1:病斑の面積が5%以下

2:病斑の面積が5～25%

3:病斑の面積が25～50%

4:病斑の面積が50%以上

各処理区および無処理区の平均値を発病度とした。

防除価(%) = (1 - 処理区の発病度 / 無処理区の発病度) × 100

【0062】

* 【表18】

第4表

化合物番号	有効成分濃度 (ppm)	防除価 (%)
1	200 50	100 100
2	200 50	100 100
3	200 50	100 100
6	200 50	100 100
7	200 50	100 100
9	200 50	100 100
14	200 50	100 100

【0063】

※ ※ 【表19】

第4表 (つづき)

化合物番号	有効成分濃度 (ppm)	防除価 (%)
15	200 50	100 100
対照化合物 A	200 50	85 50
対照化合物 B	200 50	23 0

以上の試験例に示されるように、本発明の一般式(1) 50 し優れた病害防除効果を示す一方、類似の構造を有するで表される化合物はインゲン、イチゴの灰色かび病に対 対照化合物A、Bはその効果がかなり劣り、低薬量では

35

ほとんどその効果が認められなかった。

【0064】

【発明の効果】本発明の一般式(1)で表される化合物

36

はインゲン、イチゴの灰色かび病に対し優れた病害防除効果を示し、農園芸用殺菌剤として有用である。

フロントページの続き

(51) Int. Cl. ⁶	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
A 0 1 N	43/56	A		
	43/58	A		
	43/60			
	43/76			
	43/78	B		
	43/80	1 0 1		
		1 0 2		
C 0 7 D	213/40			
	213/61			
	237/08			
	239/26			
	241/12			
	261/08			
	263/32			
	277/28			
	277/32			
	277/56			
	307/52			
	405/12	2 1 3		
		2 3 1		
	409/12	2 1 3		
		2 3 1		
		3 0 7		
	413/12	2 1 3		
		2 3 1		
		3 0 7		
		3 3 3		
	417/12	2 6 3		
		3 0 7		
		3 3 3		
(72)発明者	前田 直		(72)発明者	柳瀬 勇次
	千葉県茂原市東郷1144番地 三井東圧化学株式会社内			千葉県茂原市東郷1144番地 三井東圧化学株式会社内
(72)発明者	松永 浩文		(72)発明者	貴志 淳郎
	千葉県茂原市東郷1144番地 三井東圧化学株式会社内			千葉県茂原市東郷1144番地 三井東圧化学株式会社内
(72)発明者	勝田 裕之		(72)発明者	下鳥 均
	千葉県茂原市東郷1144番地 三井東圧化学株式会社内			千葉県茂原市東郷1144番地 三井東圧化学株式会社内

(72)発明者 稲見 俊一
千葉県茂原市東郷1144番地 三井東圧化学
株式会社内